

IFW

Docket No.: M1071.1910  
(PATENT)

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Patent Application of:  
Daiji Kono et al.

Application No.: 10/828,320

Filed: April 21, 2004

Art Unit: N/A

For: ELECTRONIC COMPONENT

Examiner: Not Yet Assigned

**CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
Japan	2004-105811	March 31, 2004
Japan	2003-115132	April 21, 2003

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is filed herewith.

Dated: June 7, 2004

Respectfully submitted,

By Richard LaCava

Richard LaCava

Registration No.: 41,135  
DICKSTEIN SHAPIRO MORIN &  
OSHINSKY LLP

1177 Avenue of the Americas  
41st Floor  
New York, New York 10036-2714  
(212) 835-1400  
Attorney for Applicant

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                    2 0 0 3 年   4 月 2 1 日  
Date of Application:

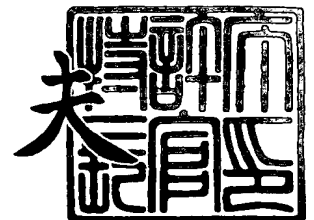
出 願 番 号                    特 願 2 0 0 3 - 1 1 5 1 3 2  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                    [ J P 2 0 0 3 - 1 1 5 1 3 2 ]

出      願      人                    株式会社村田製作所  
Applicant(s):

2 0 0 4 年   5 月 1 0 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 4 - 3 0 3 8 7 3 2

【書類名】 特許願

【整理番号】 32-0343

【提出日】 平成15年 4月21日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C03C 3/04  
C03C 6/04  
H01F 17/00

【発明者】

【住所又は居所】 京都府長岡京市天神二丁目 2 6 番 1 0 号 株式会社村田  
製作所内

【氏名】 河野 大司

【発明者】

【住所又は居所】 京都府長岡京市天神二丁目 2 6 番 1 0 号 株式会社村田  
製作所内

【氏名】 菊田 博昭

【特許出願人】

【識別番号】 000006231

【氏名又は名称】 株式会社村田製作所

【代理人】

【識別番号】 100080034

【弁理士】

【氏名又は名称】 原 謙三

【電話番号】 06-6351-4384

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 003229

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0014717

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ガラスセラミックス複合組成物、その製造方法、電子部品

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

主成分として、 $\text{SiO}_2$ を25wt%～55wt%、 $\text{MgO}$ を25wt%～55wt%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を5wt%～30wt%、 $\text{B}_2\text{O}_3$ を0～30wt%含む結晶化ガラスと、

前記主成分に対し5wt%～30wt%にて前記結晶化ガラス中に分散しているフィラーとを有していることを特徴とするガラスセラミックス複合組成物。

【請求項 2】

前記フィラーがクォーツであることを特徴とする、請求項1記載のガラスセラミックス複合組成物。

【請求項 3】

主成分として、 $\text{SiO}_2$ を25wt%～55wt%、 $\text{MgO}$ を25wt%～55wt%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を5wt%～30wt%、 $\text{B}_2\text{O}_3$ を0～30wt%含む原料粉末を溶融し、成形してガラス成形体を得る工程と、

前記ガラス成形体を粉砕してガラス粉末を得る工程と、

前記主成分に対し5wt%～30wt%のフィラーを前記ガラス粉末に添加する工程と、

前記フィラーが添加されたガラス粉末を焼成する工程とを備える、ガラスセラミックス複合組成物の製造方法。

【請求項 4】

前記ガラス粉末の比表面積を $3.5\text{ m}^2/\text{g}$ ～ $10.2\text{ m}^2/\text{g}$ とすることを特徴とする、請求項3記載のガラスセラミックス複合組成物の製造方法。

【請求項 5】

磁性体部と、

磁性体部内に形成された、請求項1または2記載のガラスセラミックス複合組成物部と、

前記ガラスセラミックス複合組成物部及び前記磁性体部の少なくとも一方に、

内部導体部とを備えていることを特徴とする電子部品。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、セラミックスと導体からなる電子部品に用いる材料に関するものであり、特に母体となる材料として磁性体を用い、部分的に磁性、誘電性、絶縁性が少なくとも一つ以上異なる材料を用いた構造とする電子部品用材料としてのガラスセラミックス複合組成物、その製造方法、それを用いた電子部品に関する。

【0 0 0 2】

代表的な電子部品としては、磁性体セラミックス材料を用いた積層チップインダクタンス素子、積層チップインピーダンス素子、積層チップコモンモードチョークコイル、LCフィルター等のEMI対策部品が挙げられる。また、多層商品、素子組み込み型商品等、積層チップ商品以外の部品にも適用される。

【0 0 0 3】

【従来の技術】

従来、フェライト等の磁性体とコイル等を形成する導体とからなる電子部品が知られている。近年、セット商品の高周波化に対応するために電子部品に対する特性の向上が要求されている。

【0 0 0 4】

代表的な電子部品である積層チップインピーダンス素子において、内部導体間、或いは外部電極と内部導体間に発生する浮遊容量が原因で高周波特性が悪化することが知られており、内部導体或いは外部導体の構造について最適化する報告が多数見られる。また、下記の特許文献1に代表される様に、積層トランスにおける結合係数を向上させるために、磁性体材料中に非磁性体を設ける構造が知られている。

【0 0 0 5】

【特許文献1】

特公昭62-22245号公報（公告日：1987年5月16日）

【0 0 0 6】

**【特許文献 2】**

特開 2 0 0 0 - 3 3 1 8 3 1 号公報（公開日：2 0 0 0 年 1 1 月 3 0 日）

**【0 0 0 7】****【発明が解決しようとする課題】**

しかしながら、従来の積層チップインピーダンス素子においては、高周波特性を悪化させる原因となる浮遊容量の値は、チップの構造と母体となる磁性体材料の比誘電率により決まり、導体の構造を工夫することによる特性の向上には限界があった。

**【0 0 0 8】**

その対策としては、部分的に比誘電率の低い材料を用いる構造とすることが考えられるが、異種材料の共焼結となるために、同時焼成の時に起こる不具合である、①材料間の相互拡散による材料特性の劣化、②収縮挙動の違いによるワレ、③熱膨張係数の違いによるワレ、の軽減をそれぞれ満たし、かつ目的とする電気特性が得られる材料については知られていない。

**【0 0 0 9】**

一方、積層トランス等に代表される、磁性体材料を備えた電子部品において、部分的に磁性の小さい材料を設ける構造とすることで特性を向上させる提案は多数見られるが、やはり、これらの問題を解決する材料に関する提案については見出せなかった。

**【0 0 1 0】**

本発明は、母体となるセラミックス材料、特に磁性材料に対して透磁率、誘電率が低く、絶縁性が高い特徴を持ち、かつ相互拡散が少なく、接合部でワレ、ハガレ等の不具合の発生を抑制できるガラスセラミックス複合組成物を提供することを目的としている。

**【0 0 1 1】****【課題を解決するための手段】**

本発明のガラスセラミックス複合組成物は、透磁率、誘電率が低く絶縁性が高く、共焼結において母体となるセラミックス、特に磁性材料と相互拡散が少なく、かつワレ、ハガレ、変形等が生じにくいことに特徴がある。更に、内部導体と

して用いられる金属、特に A g の拡散も抑制できる。種々材料を検討した結果、エンスタタイト或いはフォルステライト等の S i -M g 系の結晶を含む材料が適していることを確認した。

#### 【0012】

上記の結晶の生成方法としては、特に問われないが、酸化物から固相反応により焼結させる方法や、一度ガラス化させた後に結晶を生成させる方法等が考えられる。特にフェライト等の異種セラミックス材料と共焼結させる場合は、各々の材料を形成している元素の相互拡散を抑制するためには、結晶化ガラスを用いることが好ましく、特に、S i O<sub>2</sub>、M g O、A l<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の各組成を適宜調合しガラス化した材料にクォーツを適宜添加し、焼結して得られたものが好ましい。

#### 【0013】

また、本発明のガラスセラミックス複合組成物は、接合面でワレ、ハガレ等の不具合の発生を軽減できることが要求されるが、これについても、上記各組成を検討することにより可能とした。特に、本発明のガラスセラミックス複合組成物及びその製造方法については、S i O<sub>2</sub>: 25 w t (重量) % ~ 55 w t %、M g O: 25 w t % ~ 55 w t %、A l<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 5 ~ 30 w t %、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 0 ~ 30 w t %とする組成内で調合し、熔融することでガラス化したガラス組成物を得、そのガラス組成物に対し、クォーツ等のフィラーを 5 w t % ~ 30 w t %となるように後添加し、焼結する方法により得られる。

#### 【0014】

更に、低誘電率で焼結性が高く相互拡散が少なく、接合し易い、ガラスセラミックス複合組成物の各組成としては、S i O<sub>2</sub>: 30 w t % ~ 45 w t %、M g O: 30 w t % ~ 45 w t %、A l<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 10 w t % ~ 20 w t %、B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: 0 ~ 10 w t %、クォーツ等のフィラーの添加量としては 15 w t % ~ 25 w t %であることが好ましい。

#### 【0015】

本発明に係るガラスセラミックス複合組成物、その製造方法、上記ガラスセラミックス複合組成物を用いた電子部品の各実施例について図1ないし図3に基づ



いて説明すれば、以下の通りである。

#### 【0016】

##### 【実施例1】

セラミックス材料として、磁性材料であるNi-Cu-Zn系フェライト材料を用い、この材料と共焼結させる材料としてガラスとフィラーを混合した材料系に注目し、以下の材料を検討した。

#### 【0017】

選定の条件としては、比透磁率 $\mu_r \cong 1$ 、比誘電率 $\epsilon_r \leq 8$ 、熱膨張係数 $5 \leq \alpha \leq 15 \text{ ppm/}^\circ\text{C}$ とし、上記フェライト材料及び内部導体としてのAg、Ag/Pd (wtで85/15)、Auとの相互拡散について評価した。

#### 【0018】

表1に示す材料組成にて調合を行い、Ptルツボ中にて1600℃で熔融し、水中急冷によりガラスを得た。表1に示す各組成の配合量は、それぞれ重量(wt)%にて示されている。熔融後のガラスの不純物量として、CaO換算で3000ppm以下、他の元素については酸化物換算で200ppm以下となるように素原料を選定してある。

#### 【0019】

例えば、表1に示す組成Nの場合、 $\text{Na}_2\text{O}_3$ が100ppm、 $\text{MnO}_2$ が50ppm、 $\text{Y}_2\text{O}_3$ が100ppm、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$ が50ppm、 $\text{ZnO}$ が50ppm、 $\text{Li}_2\text{O}_3 \leq 50 \text{ ppm}$ 、 $\text{K}_2\text{O} \leq 50 \text{ ppm}$ 、 $\text{NiO} \leq 20 \text{ ppm}$ 、 $\text{CdO} \leq 10 \text{ ppm}$ 、 $\text{S} \leq 100 \text{ ppm}$ 、 $\text{CuO} \leq 100 \text{ ppm}$ 、 $\text{PbO} \leq 100 \text{ ppm}$ 、 $\text{ZrO}_2 \leq 10 \text{ ppm}$ であった。

#### 【0020】

このガラス材料を粉碎後の粉体特性が $D_{10} \leq 0.5$ 、 $D_{50} \leq 3.0$ 、 $D_{90} \leq 5.0$ 、 $D_{99} \leq 10.0$  ( $\mu\text{m}$ )、比表面積(以下S.S.A.)  $\geq 3.5$  ( $\text{m}^2/\text{g}$ )となる様にボールミルにて64時間～80時間、5mm $\phi$ のPSZ(部分安定化ジルコニア)をメディアとして、溶剤はトルエンを用いて微粉碎を行い、調整した。

#### 【0021】

その後、焼結性を考慮して表2に示す量のフィラーを添加し、ボールミルにて

16時間、PSZをメディアとして、溶剤はトルエンを用いて調合を行った。フィラーの粉体特性としては、 $D_{10} \leq 0.5$ 、 $D_{50} \leq 3.0$ 、 $D_{90} \leq 5.0$ 、 $D_{99} \leq 15.0$  ( $\mu\text{m}$ )、 $S.S.A. \geq 3.0$  ( $\text{m}^2/\text{g}$ )となる粉体、例えばクォーツをフィラーとして用いた場合は $D_{10} \leq 0.25$ 、 $D_{50} \leq 1.5$ 、 $D_{90} \leq 2.2$ 、 $D_{99} \leq 3.8$  ( $\mu\text{m}$ )、 $S.S.A. \geq 13.9$  ( $\text{m}^2/\text{g}$ )となる粉体を用いた。

#### 【0022】

調合後、PVB（ポリビニルブチラル）系のバインダを15wt%添加し、更に16時間バインダ混合し、スラリーを得た。得られたスラリーはドクターブレード法にて乾燥し、約 $50\mu\text{m}$ の厚みの、ガラス材料からなるシート状成形体を得た。上記ガラス材料には、本発明に係るガラスセラミックス複合組成物も含まれている。

#### 【0023】

次に、フェライト材料については、表7に示す組成で調合を行い、ボールミルにて16時間、PSZをメディアとして純水中にて調合を行った。水分をホットプレートにて蒸発乾燥させた後、 $750^\circ\text{C} \sim 800^\circ\text{C}$ にて仮焼を行った。仮焼された粉はボールミルにて48時間、PSZをメディアとして、溶剤はエキネン／トルエンが1／1の割合で用いて粉碎を行った。

#### 【0024】

粉碎後、PVB系のバインダを15wt%添加し、更に16時間バインダ混合を行い、スラリーを得た。得られたスラリーはドクターブレード法にて乾燥し、約 $50\mu\text{m}$ の厚みのシート状成形体を得た。

#### 【0025】

上記、ガラス材料、フェライト材料からなるシートを各々厚みが $600\mu\text{m}$ で各々の材料が貼り合わされた構造となる様に積み重ね、WIP（温水等方圧プレス）にて $1.5\text{ton}/\text{cm}^2$ で圧着を行った。

#### 【0026】

圧着された材料について一辺の長さが厚みの4倍となる様に正方形に切り出し、図1に示すように、ガラス材料1、フェライト材料2からなるシート3をフェ

ライトとの相互拡散評価用の試料として得た。

【0 0 2 7】

また、上記ガラス材料からなるシートに A g、A u 粉にエチルセルローズ系のバインダを加えて作製したペーストを幅 2 0 0  $\mu$  m 厚み 2 5  $\mu$  m となる様に塗布し、中央に導体材料が内蔵する形状に積み重ね、厚みが 1 mm、一辺が 2 mm の内部導体との相互拡散評価用試料を作製した。

【0 0 2 8】

これらの試料を 9 0 0  $^{\circ}$ C ~ 1 0 0 0  $^{\circ}$ C、保持時間 2 時間で焼成し、 $\epsilon_r$ 、熱膨張係数  $\alpha$  を調べた結果を表 2 に合わせて示し、また、相互拡散の状態を調べた結果を表 3 に示す。

【0 0 2 9】

表 2 および表 3 から明らかなように、組成「K、N、O」からなる S i - M g - A l 系の結晶化ガラスとフィラーを混合した材料において、 $\epsilon_r$  が小さく、熱膨張係数  $\alpha$  がフェライト材料に近く、更にこの磁性材料との相互拡散の程度が小さく、共焼結し易い材料であることがわかる。特にクォーツをフィラーとして用いた試料において、 $\epsilon_r$  が小さく、 $\alpha$  が大きい傾向が顕著である。表 1 に示す組成 N の試料の結晶状態を X R D (X 線回折法) により調べた結果、エンスタタイト、フォルステライト、クォーツのピークが明確に確認された。

【0 0 3 0】

【表 1】

		組成						
		SiO <sub>2</sub>	B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O
	A	60	9				1	
	B	30	15		5			
	C	30	11		3	2	2	2
	D	60	9				1	
	E	30	15		5			
	F	30	11		3	2	2	2
	G	63	15				2	
	H	35		7	17	17	2	2
	I	48		16			8	8
	J	54	10	5	15	5	1	
☆	K	35		10		35		
	L	49	10				1	
	M	54	10	5	15	5	1	
☆	N	35		10		35		
☆	O	35		10		35		
	P	49	10				1	

【0031】

【表 2】

		フィラー (wt%)			特性	
		$Al_2O_3$	$2MgO/SiO_2$	$SiO_2$ (クォーツ)	$\epsilon_r$	$\alpha$ ppm/°C
	A	30			4~6	3~5
	B	50			5~7	4~6
	C	50			7~9	5~7
	D			30	4~6	5~7
	E			50	4~6	7~9
	F			50	5~7	7~9
	G		20		4~6	5~7
	H		20		7~9	5~7
	I		20		7~9	8~10
	J	10			5~7	8~10
☆	K	20			7~9	7~9
	L	40			5~7	4~6
	M			10	4~6	9~11
☆	N			20	6~8	8~10
☆	O		20		7~9	7~9
	P			40	3~5	7~9

## 【0032】

上記表 1 および表 2 では、☆印が本実施例を示し、その他は比較例を示す。以下の表についても同様である。

## 【0033】

【表3】

		セラミック材料	導体材料			特性	
			A g	A g / P d	A u	$\epsilon_r$	$\alpha$ ppm/°C
	A	○	△	△	○	4~6	3~5
	B	×	×	×	△	5~7	4~6
	C	△	×	×	△	7~9	5~7
	D	○	△	△	○	4~6	5~7
	E	×	×	×	△	4~6	7~9
	F	△	×	×	△	5~7	7~9
	G	△	△	△	○	4~6	5~7
	H	○	○	○	○	7~9	5~7
	I	○	○	○	○	7~9	8~10
	J	×	○	○	○	5~7	8~10
☆	K	○	○	○	○	7~9	7~9
	L	△	○	○	○	5~7	4~6
	M	×	○	○	○	4~6	9~11
☆	N	○	○	○	○	6~8	8~10
☆	O	○	○	○	○	7~9	7~9
	P	△	○	○	○	3~5	7~9

【0034】

上記表3では、試料内部の研磨面をWDX（波長分散型X線分析法）により観察し、強度を濃度に換算した値が、本発明のガラスセラミックス複合組成物とセラミックス材料間では0.1%以上、本発明のガラスセラミックス複合組成物と導体材料間では0.5%以上となる拡散の範囲が材料接合界面から25 $\mu$ m以下の場合を「○」、25~50 $\mu$ mを「△」、50 $\mu$ m以上に及ぶ場合について「×」とした。

【0035】

## 【実施例2】

次に、本発明のガラスセラミックス複合組成物の電気的な絶縁性について評価した結果を示す。評価の対象とした材料は、実施例1で示した表1および表2に

示した試料と同様である。これらの材料に内部導体として Ag を用い電極が対抗する構造となるテストチップを作製し、電界下での耐湿性、高温性について評価を行った。表 1 および表 2 に示す材料からなるシート状成型体をそれぞれ作製した。作製方法は実施例 1 と同様である。

#### 【0036】

これら各シート状成型体に、図 2 に示すように、Ag 粉にエチルセルロース系のバインダを加えて作製したペーストを幅  $200\mu\text{m}$  厚み  $25\mu\text{m}$  となる様に塗布し、中央に導体材料 4 が距離  $50\mu\text{m}$  の間隔で対向するコンデンサ構造となるように積層、圧着、カットし、厚みが  $1\text{mm}$ 、一辺が  $2\text{mm}$  の成型体をそれぞれ得た。

#### 【0037】

これら各成型体を  $900^\circ\text{C}$ 、保持時間 2 時間で焼成し、続いて、Ag、エチルセルロース系バインダ、テルピネオールを主成分とするペーストを各導体材料が露出している各端面にそれぞれ塗布し  $850^\circ\text{C}$  で焼き付けを行うことで、上記ペーストからの各外部電極 5 をそれぞれ形成し、絶縁性評価用試料 6 をそれぞれ得た。

#### 【0038】

これらの絶縁性評価用試料に電界強度が  $1.0\text{ kV/mm}$  となるように電圧を負荷した状態で、 $70^\circ\text{C}$  で湿度が  $95\%$  の恒温恒湿槽（恒温恒湿条件）及び  $120^\circ\text{C}$  の高温槽（高温条件）にそれぞれ投入し、抵抗値の変化から絶縁性の評価を行った。その結果を表 4 に示す。

#### 【0039】

表 4 から明らかなように、組成「K、N、O」からなるからなる Si-Mg-Al 系の結晶化ガラスとフィラーとを互いに混合した材料（ガラスセラミックス複合組成物）は、 $\epsilon_r$  が小さく、かつ熱膨張係数  $\alpha$  がフェライト材料に近く、さらに絶縁性の高い材料であることがわかる。

#### 【0040】

【表 4】

		恒温 恒湿条件	高温条件	特性	
				$\epsilon$ r	$\alpha$ ppm/℃
	A	×	×	4 ~ 6	3 ~ 5
	B	×	×	5 ~ 7	4 ~ 6
	C	×	×	7 ~ 9	5 ~ 7
	D	×	×	4 ~ 6	5 ~ 7
	E	×	×	4 ~ 6	7 ~ 9
	F	×	×	5 ~ 7	7 ~ 9
	G	△	○	4 ~ 6	5 ~ 7
	H	△	○	7 ~ 9	5 ~ 7
	I	△	○	7 ~ 9	8 ~ 10
	J	△	△	5 ~ 7	8 ~ 10
☆	K	○	○	7 ~ 9	7 ~ 9
	L	×	×	5 ~ 7	4 ~ 6
	M	△	△	4 ~ 6	9 ~ 11
☆	N	○	○	6 ~ 8	8 ~ 10
☆	O	○	○	7 ~ 9	7 ~ 9
	P	×	×	3 ~ 5	7 ~ 9

## 【0041】

上記表 4 においては、各条件における試料投入数は 30 ケとした。投入後に抵抗値が二桁以上低下した時間を劣化時間としてワイブルプロットを行い、3.3 %の累積故障時間が 500 h を超えるものを「○」、100 h ~ 500 h を「△」、100 h 未満を「×」とした。

## 【0042】

## 【実施例 3】

実施例 1 及び 2 で検討した組成「N」からなる材料系に注目して、表 5 に示す組成からなる試料を用意し、磁性体と本発明の材料を貼り合わせた構造の試料を作製し、焼成することで磁性体との共焼結性を評価した。

## 【0043】



磁性材料として、Ni-Cu-Zn系フェライト材料を用い、実施例 1 と同様の方法で、本発明の材料及び磁性体材料からなるシート状の成形体を得た。各々のシート状成形体を厚みが等しくなるように積み重ねて、 $1.0 \text{ ton/cm}^2$ 、 $60^\circ\text{C}$ 、 $30 \text{ sec}$ で圧着し、裁断することで、図 1 に示すような試料を各々の寸法の割合を変化させて作製した。

#### 【0044】

これらの試料を昇温時間が $300^\circ\text{C/h}$ 、トップ温度が $900^\circ\text{C}$ 、保持時間 2 時間、降温時間が $200^\circ\text{C/h}$ からなる条件にて焼成し、試料のクラック、ワレを評価した。これらの結果と、各組成の材料特性、実施例 2 と同様の方法による絶縁性評価結果を合わせて表 5 および表 6 に示す。

#### 【0045】

【表 5】

組成 (wt%) SiO <sub>2</sub> /MgO/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (クォーツ外掛け)		共焼結性		相互拡散	
		形状 A	形状 B	磁性体	Ag 導体
	ア : 35/35/10/20 (0)	×	×	○	○
☆	イ : 35/35/10/20 (5)	○	×	○	○
☆	ウ : 35/35/10/20 (10)	○	×	○	○
☆	エ : 35/35/10/20 (15)	○	○	○	○
☆	オ : 35/35/20/10 (15)	○	○	○	○
☆	カ : 35/35/10/20 (20)	○	○	○	○
☆	キ : 35/35/20/10 (20)	○	○	○	○
☆	ク : 35/35/10/20 (25)	○	○	○	○
☆	ケ : 35/35/20/10 (25)	○	○	○	○
☆	コ : 35/35/10/20 (30)	○	○	○	○
	サ : 35/35/10/20 (35)	○	×	○	○
	シ : 20/45/25/10 (20)	×	×	○	○
	ス : 20/60/10/10 (20)	×	×	○	○
☆	セ : 25/55/10/10 (20)	○	×	○	○
☆	ソ : 25/40/25/10 (20)	○	○	○	○
☆	タ : 30/35/25/10 (20)	○	○	○	○
☆	チ : 30/40/20/10 (20)	○	○	○	○
☆	ツ : 40/35/15/10 (20)	○	○	○	○
☆	テ : 40/40/10/10 (20)	○	○	○	○
☆	ト : 50/30/10/10 (20)	○	○	○	△
☆	ナ : 55/25/10/10 (20)	○	×	○	△
	ニ : 60/20/10/10 (20)	×	×	○	×
	ヌ : 40/40/0/20 (20)	○	○	○	×
☆	ネ : 37.5/37.5/5/20 (20)	○	○	○	○
☆	ノ : 32.5/32.5/15/20 (20)	○	○	○	○
☆	ハ : 40/30/20/10 (20)	○	○	○	○
☆	ヒ : 30/30/20/20 (20)	○	○	○	○
☆	フ : 27.5/27.5/25/20 (20)	○	○	○	○
☆	ヘ : 25/25/30/20 (20)	○	○	○	○
	ホ : 22.5/22.5/35/20 (20)	○	○	○	○
☆	マ : 30/30/30/10 (20)	○	○	○	○
☆	ミ : 30/30/10/30 (20)	○	×	○	△
	ム : 27.5/27.5/10/35 (20)	×	×	○	×

【0046】

【表 6】

組成 (wt%) SiO <sub>2</sub> /MgO/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (クォーツ外掛け)		絶縁性	焼結性	特性	
				ε r	α ppm/℃
	ア : 35/35/10/20 (0)	△	○	5.9	7.5
☆	イ : 35/35/10/20 (5)	△	○	5.8	8.0
☆	ウ : 35/35/10/20 (10)	△	○	5.7	8.5
☆	エ : 35/35/10/20 (15)	△	○	5.7	9.0
☆	オ : 35/35/20/10 (15)	○	○	6.2	9.7
☆	カ : 35/35/10/20 (20)	△	○	5.6	9.4
☆	キ : 35/35/20/10 (20)	○	○	6.1	10.1
☆	ク : 35/35/10/20 (25)	△	○	5.5	9.8
☆	ケ : 35/35/20/10 (25)	○	○	5.5	10.1
☆	コ : 35/35/10/20 (30)	△	△	5.5	10.1
	サ : 35/35/10/20 (35)	×	×	5.4	10.5
	シ : 20/45/25/10 (20)	△	×	6.6	11.2
	ス : 20/60/10/10 (20)	△	×	6.2	11.7
☆	セ : 25/55/10/10 (20)	△	△	6.0	11.3
☆	ソ : 25/40/25/10 (20)	△	△	6.5	10.8
☆	タ : 30/35/25/10 (20)	△	○	6.4	10.4
☆	チ : 30/40/20/10 (20)	○	○	6.2	10.5
☆	ツ : 40/35/15/10 (20)	○	○	5.9	9.9
☆	テ : 40/40/10/10 (20)	○	○	5.7	10.0
☆	ト : 50/30/10/10 (20)	△	○	5.5	9.2
☆	ナ : 55/25/10/10 (20)	△	○	5.4	8.8
	ニ : 60/20/10/10 (20)	△	○	5.3	8.3
	ヌ : 40/40/0/20 (20)	×	△	5.2	9.3
☆	ネ : 37.5/37.5/5/20 (20)	△	○	5.4	9.3
☆	ノ : 32.5/32.5/15/20 (20)	△	○	5.8	9.4
☆	ハ : 40/30/20/10 (20)	○	○	6.0	9.7
☆	ヒ : 30/30/20/20 (20)	△	○	6.0	9.5
☆	フ : 27.5/27.5/25/20 (20)	△	○	6.2	9.5
☆	ヘ : 25/25/30/20 (20)	△	○	6.4	9.6
	ホ : 22.5/22.5/35/20 (20)	×	△	6.7	9.7
☆	マ : 30/30/30/10 (20)	△	○	6.6	10.2
☆	ミ : 30/30/10/30 (20)	△	○	5.5	8.8
	ム : 27.5/27.5/10/35 (20)	△	○	5.4	8.4

【0047】

クォーツ量が5wt%未満、及び30wt%を超えるとワレが発生し易い事がわかる。また、30wt%を超えると焼結性が困難（劣化）になる。ワレの結果

から 15 wt % ~ 25 wt % が好ましい事がわかる。

【0048】

SiO<sub>2</sub>について、25 wt % 未満ではガラス化が困難になる。また、ワレも発生し易くなる。55 wt % を超えると熱膨張係数が小さくなり、ワレが発生しやすくなる。

【0049】

MgOについて、25 wt % より小さいとガラスが不安定になり、熔融温度が高くなる、また、結晶化温度が上昇するため熱膨張係数が小さくなり、ワレが発生し易くなる。また、55 wt % より多いとガラス化が困難になる。

【0050】

さらに、SiO<sub>2</sub>及びMgOについては、絶縁性、誘電特性、熱膨張係数を総合的に考慮すると各々、30 wt % ~ 45 wt % とする事が好ましい。

【0051】

Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>について 5 wt % 未満ではガラスが不安定になり、またAgが拡散し易くなる。30 wt % を超えるとガラスの熔融温度が高くなる、また、ε<sub>r</sub>が大きくなるため好ましくない。

【0052】

B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は無くとも焼成可能であるが、熔融温度が高くなる。30 wt % を超えるとAgの拡散が著しくなり、また、結晶量が不足し、熱膨張係数が小さくなるので、5 wt % ~ 15 wt % が好ましい。

【0053】

以上の事から、Ni-Cu-Zn系フェライト材料と共焼結するに適した材料組成について見出すことが出来た。また、これらのことから、本発明のガラスセラミックス複合組成物を材料として用いることで、対象となるフェライト材料、しいてはセラミックス材料の種類が変わっても、組成を調整することにより共焼結性が良好でかつμ<sub>r</sub>、ε<sub>r</sub>が小さく、かつ電氣的な絶縁性が高いガラスセラミックス複合組成物が得られることが容易に想定される。

【0054】

上記表5および表6では、相互拡散、絶縁性の評価方法は表3、表4と同様で

あり、共焼結性評価としては、光学顕微鏡にて試料表面にワレ、クラック、或いは試料界面でのハガレ、クラックの見られるものを「×」、見られないものを「○」とした。

#### 【0055】

上記表5および表6においては、形状Aとは貼り合わせた各々の材料厚みが500 $\mu$ m、厚みの合計が1000 $\mu$ mで一辺の長さが4000 $\mu$ mの直方体。形状Bとは貼り合わせた各々の材料厚みが2000 $\mu$ m、厚みの合計が4000 $\mu$ mで一辺の長さが8000 $\mu$ mの直方体とした。

#### 【0056】

上記表5および表6では、焼結性評価として、900℃と950℃とでの焼結体の密度変化が5%以下のものを「○」、5%を超え、10%以下のものを「△」、10%を超えるものを「×」とした。

#### 【0057】

#### 【実施例4】

実施例3で検討した組成「テ」からなる材料系について、Ni-Cu-Zn以外の磁性材料について共焼結性について評価した。本発明の材料としては、SiO<sub>2</sub>/MgO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>（クォーツ）が40/40/10/10/（20）wt%、（クォーツは外掛け）となる組成からなり、実施例1同様にシート形状に成形した試料を用いた。

#### 【0058】

磁性材料としては表7に示すA～Eまで、組成及び結晶構造の異なる5種類の材料について、実施例1同様にシート形状に成形した試料を用い、実施例1及び3同様に材料界面での相互拡散、ワレ、クラックに関する共焼結性について評価を行った。表7では、各酸化物の配合量は、モル（mol）%にてそれぞれ示されている。上記評価の結果を以下の表8に示す。

#### 【0059】

【表 7】

	酸化物										
	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	ZnO	NiO	CuO	MgO	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaCO <sub>3</sub>	BaO	Co <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	SrO	V <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
Ni-Cu-Znの hi-μ	48	30	10	12							
Ni-Cu-Znの low-μ	48	5	35	12							
Mg-Cu-Zn系 (立方晶)	48	30		12	10						
Ba-Cu系 (六方晶)	59			12				14	11	4	
Y-Ca系 (カペネット)	54					27	15				4

【0060】

【表 8】

	相互拡散	共焼結性	
		形状 A	形状 B
A : Ni - Cu - Zn 系	○	○	○
B : Ni - Cu - Zn 系	○	○	○
C : Mg - Cu - Zn 系	○	○	×
D : Ba - Cu 系	○	○	×
E : Y - Ca 系	○	○	×

【0061】

組成及び結晶構造の異なる何れの磁性体材料においても相互拡散の程度は低く、かつ共焼結性についても、構造に制約があるものの比較的容易であることがわかる。これらの特徴は本発明のガラスセラミックス複合組成物が、ガラスとフィラーとの各組成を備えたことに起因する、特有の焼結時の粘度特性によるところが大きい。このことから、本発明に係るガラスセラミックス複合組成物は、接合する対象となる材料がNi-Cu-Zn材料に限らず、その他の磁性体材料、しいては他のセラミックス材料にも適合し易いことが容易に推測される。上記表8では、評価基準は実施例1及び3と同様とした。

【0062】

【実施例 5】

実施例 3 及び 4 で検討した組成「テ」からなる材料系について、結晶化ガラスの微粉碎後の粉体特性と電気的な絶縁性の関係を調べた。本発明の材料としては、 $\text{SiO}_2/\text{MgO}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{B}_2\text{O}_3$  (クォーツ) が 40/40/10/10/(20) wt%、(クォーツは外掛け) となる各組成からなり、結晶化ガラス材料の微粉碎時間を調整する事で、その S. S. A. の値が、 $2.1\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $3.1\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $3.5\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $4.8\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $5.7\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $7.5\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $10.2\text{ m}^2/\text{g}$ 、 $12.4\text{ m}^2/\text{g}$  となる 8 種類の材料をそれぞれ得た。これらの材料を用いて、実施例 1 及び 2 同様に絶縁性評価用試料を作製し、実施例 2 同様に耐湿負荷試験を行った結果を、表 9 に示す。

【0063】

【表 9】

		評価結果
微粉碎後の S. S. A. ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	2.1	×
	3.1	×
	3.5	○
	4.8	○
	5.7	○
	7.5	○
	10.2	○
	12.4	○

【0064】

電気的な絶縁性に対しては S. S. A. がある一定以上の値である事が好ましく、高い絶縁性を得るためには、S. S. A. の値を  $3.5\text{ m}^2/\text{g}$  以上とすることが好ましいことがわかる。また、 $12.4\text{ m}^2/\text{g}$  とすると、粉碎メディアからのコンタミが増え、ガラス材料の焼結状態が不安定になるという点から、 $10.2\text{ m}^2/\text{g}$  以下が望ましいことがわかる。上記表 9 においては、判断基準は実施例 2 と同様である。

【0065】

本発明のガラスセラミックス複合組成物を用いた本発明に係る電子部品の各例を、図3（a）ないし図3（f）にそれぞれ示す。上記電子部品は、略直方体形状や略円板状に形成された磁性体部としてのフェライト材料部2と、フェライト材料部2内に形成された、本発明のガラスセラミックス複合組成物を用いた非磁性体部としてのガラス材料部1と、前記ガラス材料部1及び前記フェライト材料部2の少なくとも一方に、コイル状又は互いに対面する各層状の内部導体部としての内部電極4とを備えている。さらに、上記電子部品では、内部電極4と電氣的に接続された外部電極5が設けられていることが好ましい。

#### 【0066】

このような電子部品においては、非磁性体部としてのガラス材料部1を内蔵していることで、内部電極4と外部電極5との間に発生する浮遊容量を低減できて、上記浮遊容量に起因する高周波特性の悪化を抑制しながら、ガラス材料部1とフェライト材料部2との共焼結時の前記不具合を軽減できて、歩留りを向上できる。

#### 【0067】

さらに、図3（a）に記載の電子部品では、コイル間及び外部電極の浮遊容量を減少させること、また、直流重畳特性を向上させることを主目的とした、インピーダンス素子とすることができる。図3（b）ないし図3（d）に記載の各電子部品においては、直流重畳特性を向上させることを主目的とした、インピーダンス素子を得ることが可能となる。

#### 【0068】

図3（e）に記載の電子部品は、誘電体部7中に設けられた互いに対面する各層状の内部電極4を備えた板状のコンデンサ部8と、フェライト材料部2内にコイル状の内部電極4を備えた板状のインダクタンス部9とを互いに積層したLC素子である。誘電体部7の素材としては、通常のコンデンサに使用される誘電体や、本発明のガラスセラミックス複合組成物が使用できる。上記電子部品では、インダクタンス部9のコイル間の浮遊容量を減少させることを主目的とした、LC素子とすることができる。

#### 【0069】



図3 (f) に記載の電子部品においては、各インダクタンス部 9 a、9 b のコイル間の結合を向上させること、また、上記コイル間の浮遊容量を減少させることを主目的とした、コモンモードチョークコイル素子を得ることができる。

#### 【0070】

##### 【発明の効果】

本発明のガラスセラミックス複合組成物を用いれば、磁性体材料に代表されるセラミックス材料に対して、比較的強固な接合であるにもかかわらず、各材料界面での相互拡散が少ない良好な共焼結性を得ることが可能となり、かつ材料の特性として  $\mu_r$ 、 $\epsilon_r$  が小さく、更に絶縁性も高い材料を得ることが可能となる。

#### 【0071】

よって、本発明のガラスセラミックス複合組成物は、セラミックス、特に磁性体等からなる電子部品等に部分的に形成することが可能なため、電子部品としての電気特性を向上することが可能となる。

#### 【0072】

さらに、本発明のガラスセラミックス複合組成物は、内部導体として用いられる Ag 等の金属材料の拡散を抑制でき、Ag 等の低抵抗な金属材料を使用できることから、直流抵抗を低減できる。

#### 【0073】

また、本発明のガラスセラミックス複合組成物の用途としては共焼結からなる接合に限らず、例えば焼結体を接着剤なる材料で張り合わせた構造からなる電子部品においても、その電気特性及び熱膨張係数の性格から効果的であることは言うまでもない。

##### 【図面の簡単な説明】

##### 【図1】

本発明のガラスセラミックス複合組成物を評価するための、フェライトとの相互拡散評価用の試料を示す斜視図である。

##### 【図2】

本発明のガラスセラミックス複合組成物を評価するための、絶縁性評価用試料を示す斜視図である。

**【図 3】**

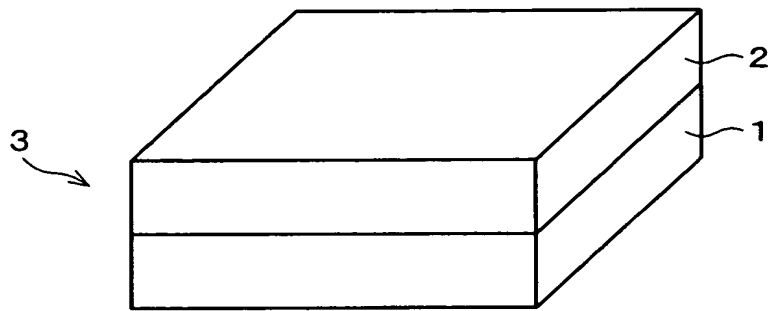
(a) ～ (f) は、本発明に係る電子部品の各例の概略断面図である。

**【符号の説明】**

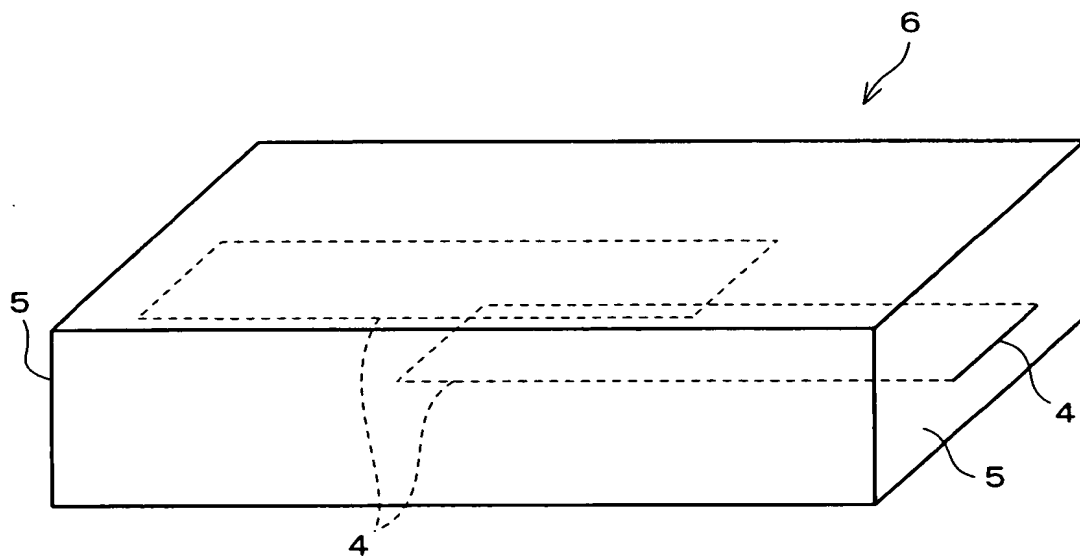
- 1      ガラス材料部（非磁性体部）
- 2      フェライト材料部（磁性体部）
- 4      内部電極（内部導体部）
- 5      外部電極

【書類名】 図面

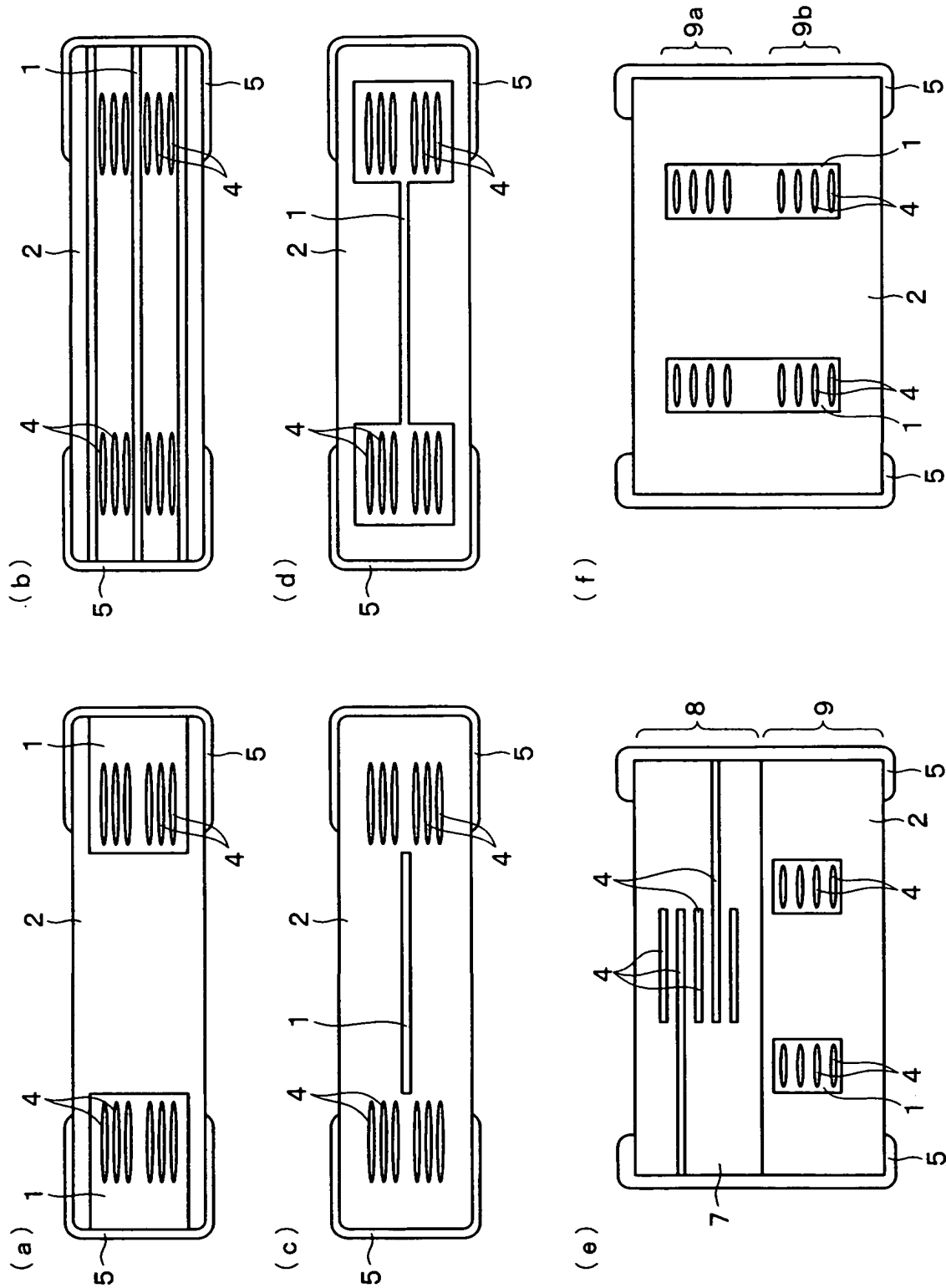
【図 1】



【図 2】



【図 3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 透磁率、誘電率が低く絶縁性が高く、共焼結において母体となるセラミックス、特に磁性材料と相互拡散が少なく、かつワレ、ハガレ、変形等が生じにくいガラスセラミックス複合組成物、その製造方法、それを用いた電子部品を提供する。

【解決手段】 主成分として、 $\text{SiO}_2$ を25wt%～55wt%、 $\text{MgO}$ を25wt%～55wt%、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ を5wt%～30wt%、 $\text{B}_2\text{O}_3$ を0～30wt%含む結晶化ガラスを形成する。前記主成分に対して5wt%～30wt%のクォーツ等のフィラーを前記結晶化ガラス中に分散させてガラスセラミックス複合組成物を調製する。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 3 - 1 1 5 1 3 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 6 2 3 1 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 8 日
[変更理由]	新規登録
住 所	京都府長岡京市天神二丁目 2 6 番 1 0 号
氏 名	株式会社村田製作所